

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Masanori TSUJI et al.

Serial No. NEW

Filed January 16, 2002

:

:

: Attn: Application Branch

: Attorney Docket No. 2002\_0038A

A MOLDED PRODUCT OF ACTIVATED CARBON  
AND A METHOD FOR PRODUCTION THEREOF

CLAIM OF PRIORITY UNDER 35 USC 119

Assistant Commissioner for Patents,  
Washington, DC 20231

Sir:


Applicants in the above-entitled application hereby claim the date of priority under the International Convention of Japanese Patent Application No. 2001-023335, filed January 31, 2001, as acknowledged in the Declaration of this application.

A certified copy of said Japanese Patent Application is submitted herewith.

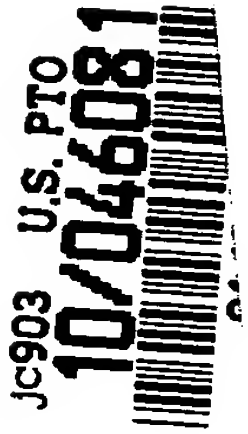
Respectfully submitted,

Masanori TSUJI et al.

By

  
Warren M. Cheek, Jr.  
Registration No. 33,367  
Attorney for Applicants

WMC/dlk  
Washington, D.C. 20006-1021  
Telephone (202) 721-8200  
Facsimile (202) 721-8250  
January 16, 2002



Masanori TSUJI  
P059 US 2002-0038A

JC903 U.S. PTO  
10/046081  
01/16/02

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2001年 1月31日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2001-023335

出 願 人  
Applicant(s):

武田薬品工業株式会社

2001年12月14日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3108724

【書類名】 特許願

【整理番号】 P0302

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B01J 20/20  
C08L 6/06  
C01B 31/08

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区十三本町二丁目 1 7 番 8 5 号 武田  
薬品工業株式会社 生活環境カンパニー内

【氏名】 辻 正則

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区十三本町二丁目 1 7 番 8 5 号 武田  
薬品工業株式会社 生活環境カンパニー内

【氏名】 亀野 昌昭

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市淀川区十三本町二丁目 1 7 番 8 5 号 武田  
薬品工業株式会社 生活環境カンパニー内

【氏名】 古川 圭三

【特許出願人】

【識別番号】 000002934

【氏名又は名称】 武田薬品工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100071973

【弁理士】

【氏名又は名称】 谷 良隆

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 060956

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】・	明細書	1
【物件名】	要約書	1
【プルーフの要否】	要	

【書類名】 明細書

【発明の名称】・ 活性炭成形体の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 活性炭、溶媒および常温で固体でありかつ溶媒に対する可溶成分が 50～95重量%であるフェノール・アルデヒド系樹脂を含んでなる混練物を成形、乾燥した後、不活性雰囲気下で炭化する活性炭成形体の製造方法。

【請求項 2】 フェノール・アルデヒド系樹脂の使用量が、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して10～80重量%であり、溶媒の使用量が、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して10～60重量%である請求項 1 記載の活性炭成形体の製造方法。

【請求項 3】 成形体の形状がペレット状、球状またはハニカム状である請求項 1 記載の活性炭成形体の製造方法。

【請求項 4】 溶媒が、アルコール類、ケトン類、エステル類、エーテル類、非プロトン性極性溶媒類、またはそれらの少なくとも 1 種と水との混合物である請求項 1 記載の活性炭成形体の製造方法。

【請求項 5】 乾燥を、80～120℃で行う請求項 1 記載の活性炭成形体の製造方法。

【請求項 6】 炭化を、500～1200℃で行う請求項 1 記載の活性炭成形体の製造方法。

【請求項 7】 請求項 1 ～ 6 記載のいずれかの方法により製造された活性炭成形体。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、活性炭を素材とする成形体の製造方法に関するものである。本発明の方法で製造された活性炭成形体は、吸着性および機械的強度に優れ、市販されている活性炭成形体と同様、下水処理場から発生する臭気の除去、溶媒回収、オゾン処理等の広い分野で 사용할 ことができる。

【 0 0 0 2 】

## 【従来の技術】

これまでも、フェノール・アルデヒド系樹脂をバインダーとした活性炭成形体の製造方法はいくつか知られている。特開昭49-115110号記載の方法では、木炭等の炭素材にフェノール・アルデヒド系樹脂を加えて押出し成形した後に炭化あるいは炭化後に賦活することにより活性炭成形体を製造しているが、炭化後の比表面積は高々 $300\text{m}^2/\text{g}$ しかなく、賦活することにより比表面積 $1100\text{m}^2/\text{g}$ のものを得ている。特開昭57-27130号では、炭素材にフェノール系樹脂、メラミン系樹脂等の合成樹脂繊維を使用し、特開平3-42039号では炭素材に粉末活性炭を使用して、共にフェノール樹脂系バインダーと混合し成形した後に炭化、賦活をおこなっている。

しかし賦活工程が必要なことにより、成形体の機械的強度が低下してしまううえ、コスト高になり、工業的に好ましいものではない。

## 【0003】

特開昭55-167118号および特開平7-207119号では、活性炭に常温で液状のフェノール・アルデヒド系樹脂をバインダーとして用いて成形し、乾燥、硬化させることにより活性炭成形体を製造する方法が記載されている。しかしこの手法の場合、賦活は行われず、且つバインダー成分が活性炭の細孔を閉塞するため、活性炭の吸着能が著しく低下するという問題がある。

## 【0004】

## 【発明が解決しようとする課題】

上述したように従来の製法においては、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂を原料として高い吸着量を有する活性炭成形体を得るために炭化後に賦活する工程が必須であり、製造工程が複雑になるうえ、成形体の機械的強度が低下するという問題があった。

特に、成形体の構造がハニカム状である場合には、吸着力とともに成形体としての高い強度が求められる。市販されているハニカム状活性炭は、通常、活性炭に粘土等の無機系材料とともにメチルセルロース等の結合剤を加えて混練・成形し、炭化することにより製造されているが、この方法で製造したハニカム状活性炭は、下水処理場での排気脱臭用途などのように酸性雰囲気下で使用した場合には

強度が著しく低下するという問題があった。

【0 0 0 5】

【課題を解決するための手段】

そこで本発明は、活性炭、溶媒、および常温（25℃）で固体でありかつ溶媒に対する可溶成分が50～95重量%であるフェノール・アルデヒド系樹脂を含んでなる混練物を成形、乾燥した後、不活性雰囲気下で実質的に賦活を伴わず炭化することによって、高吸着性能、高強度の活性炭を製造することに成功した。

すなわち本発明は、

（1）活性炭、溶媒および常温で固体でありかつ溶媒に対する可溶成分が50～95重量%であるフェノール・アルデヒド系樹脂を含んでなる混練物を成形、乾燥した後、不活性雰囲気下で炭化する活性炭成形体の製造方法、

（2）フェノール・アルデヒド系樹脂の使用量が、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して10～80重量%であり、溶媒の使用量が、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して10～60重量%である（1）記載の活性炭成形体の製造方法、

（3）成形体の形状がペレット状、球状またはハニカム状である（1）の活性炭成形体の製造方法、

（4）溶媒が、アルコール類、ケトン類、エステル類、エーテル類、非プロトン性極性溶媒類、またはそれらの少なくとも1種と水との混合物である（1）記載の活性炭成形体の製造方法、

（5）乾燥を、80～120℃で行う（1）記載の活性炭成形体の製造方法。

（6）炭化を、500～1200℃で行う（1）記載の活性炭成形体の製造方法、および

（7）（1）～（6）記載のいずれかの方法により製造された活性炭成形体、である。

【0 0 0 6】

【発明の実施の形態】

原料として使用する活性炭はその比表面積が、通常400～2500m<sup>2</sup>/g、好ましくは600～2200m<sup>2</sup>/g、更に好ましくは、800～2000m<sup>2</sup>/gのものである。活性炭の粒度



は、通常 $150\mu\text{m}$ 以下の粒子が95～100重量%、好ましくは97～100重量%、更に好ましくは99～100重量%のものである。なお活性炭の原料としては、特に制限は無いが、ヤシ殻、木粉、素灰、石炭、および有機化合物誘導体等から製造された市販の活性炭を使用することができるが、ヤシ殻を原料とした活性炭を使用することが好ましい。

## 【 0 0 0 7 】

フェノール・アルデヒド系樹脂は、熱硬化性のものであり、常温（ $25^{\circ}\text{C}$ ）で固体であるもの、より好ましくは $50^{\circ}\text{C}$ で固体であるものが用いられる。フェノール・アルデヒド系樹脂の可溶成分の量は、樹脂にその20倍重量の溶媒を加え、室温（ $25^{\circ}\text{C}$ ）にてマグネチックスターラーを用いて1時間攪拌した後、No. 5Aの濾紙（東洋濾紙製）を用いて濾過し、乾燥後に濾紙上に残存している樹脂の量を測定することにより求める。

本発明に用いられるフェノール・アルデヒド系樹脂の溶媒に対する可溶成分の量は、通常50～95重量%、好ましくは60～93重量%、より好ましくは70～90重量%である。可溶成分の量がこの値よりも多い場合には、フェノール・アルデヒド系樹脂が活性炭の細孔内に入り込みやすいため、製造された活性炭成形体の吸着能の低下が生じる。可溶成分がこの値よりも少ない場合には、フェノール・アルデヒド系樹脂がバインダーとしての役割を十分に果たすことができず、製造された活性炭成形体の強度が低下する。フェノール・アルデヒド系樹脂は、常温（ $25^{\circ}\text{C}$ ）で固体であることが必要であり、常温で液状の樹脂を使用した場合には、製造された活性炭成形体の吸着能が低下する。

## 【 0 0 0 8 】

用いる固体状フェノール・アルデヒド系樹脂の形状は特に制限はなく、たとえば球状、破碎状、針状のものが使用可能であり、好ましくは球状のものである。フェノール・アルデヒド系樹脂の比重は、通常1.0～1.5、好ましくは1.1～1.4である。フェノール・アルデヒド系樹脂の嵩密度は、通常 $0.3\sim 0.7\text{g/cc}$ 、好ましくは $0.35\sim 0.6\text{g/cc}$ であり、その粒度は、通常 $150\mu\text{m}$ 以下の粒子が99～100重量%、好ましくは $75\mu\text{m}$ 以下の粒子が98～100重量%のものである。フェノール・アルデヒド系樹脂の平均粒子径は、通常 $10\sim 50\mu\text{m}$ 、好ましくは、 $15\sim 40\mu\text{m}$ である。



これらの条件を満たすフェノール・アルデヒド系樹脂は、フェノールまたはフェノール化合物とホルムアルデヒドとの共重合によって製造されるものがその代表例として挙げられる。フェノール以外のフェノール系化合物として、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、ビスフェノールA、*o*-、*m*-または $p$ - $C_3 \sim C_6$ アルキルフェノール、*p*-フェニルフェノール、キシレノール、ハイドロキノン、またはレゾルシンが含まれていてもかまわない。これらの樹脂の製造時において、原料中に尿素、チオ尿素及びこれらのメチロール誘導体、アニリン、メラミン、グアニジン、グアナミンまたはジシアンジアミド等が含まれていてもかまわない。

これらのフェノール・アルデヒド系樹脂は、既知のいずれの方法で製造されたものでもよい。フェノール・アルデヒド系樹脂の製造法としては、たとえば特開昭57-177011号や特開昭58-17114号などにも示されているが、本発明においてはこれに限定されるものではなく、上述した条件を満たすものであればいずれも使用可能である。

#### 【 0 0 0 9 】

溶媒は、フェノール・アルデヒド系樹脂を溶解し分散させるために用いられるもので、例えば、メチルアルコール、エチルアルコール、*n*-プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、*n*-ブチルアルコール、第四級-ブチルアルコール、イソブチルアルコール、*n*-アミルアルコール、第二級-アミルアルコール、1-エチル-1-プロパノール、2-メチル-1-ブタノール、イソアミルアルコール、第四級-アミルアルコール、第二級-イソアミルアルコール、ネオアミルアルコール、*n*-ヘキシルアルコール、2-メチル-1-ペンタノール、ヘプチルアルコール、*n*-オクチルアルコール、2-エチルヘキシルアルコール、高級アルコール類などの脂肪族アルコールや、アリルアルコールなどの不飽和脂肪族アルコール類、ベンジルアルコールやシクロヘキシルアルコール、フルフリルアルコールなどの脂肪族または脂環式アルコール類、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ポリエチレングリコールなどの多価アルコール類、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテルな

どのアルコールエーテル類、アセトニトリル、ジメチルスルホキシド、N,N-ジメチルホルムアミド、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、スルフォランなどの非プロトン系極性溶媒、ケトン類、エステル類、N-メチルピロリドンなどの窒素化合物または、それらの少なくとも一種と水との混合物などが挙げられる。水との混合物としては、該溶媒に既に水が含まれているものが挙げられる。すでに含まれている水の量としては、使用する溶媒の種類によって異なるが、通常30重量%まで、好ましくは10重量%までである。

本発明ではここに掲げた溶媒に限定されるものではなく、フェノール・アルデヒド系樹脂に対して溶解性を有する溶媒であればいずれも使用可能である。

#### 【 0 0 1 0 】

本発明における成形処方における補助的バインダーとして、セルロースエーテル誘導体を使用してもかまわない。代表例としてメチルセルロース、エチルヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシブチルセルロース、ヒドロキシブチルメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロースおよびそれらの混合物などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

またその他の成形助剤として、多糖類、ポリエチレングリコール等を必要に応じて添加しても良く、その種類や組み合わせは本発明において特に限定されるものではない。

フェノール・アルデヒド系樹脂の含有量は、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して通常10～80重量%、好ましくは、15～70重量%、最も好ましくは20～50重量%である。10重量%未満の場合、バインダーとしての役割を充分には果たさず、80重量%以上の場合には、製造される活性炭成形体の吸着能の低下が起きるので好ましくない。

#### 【 0 0 1 1 】

溶媒は、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して10～60重

量%、好ましくは20～50重量%である。

押出し成形時の装置の負荷低減のために、押出し時の直前に、さらに水を添加してもよい。この時の水の添加量は、押出し装置の負荷によって調整することができるが、通常活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して30～150重量%、好ましくは、50～120重量%である。

セルロースエーテル誘導体の使用量は、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対して通常1～30重量%であり、好ましくは3～25重量%、最も好ましくは5～20重量%である。

フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、溶媒を加えて十分に混練する。混練方法は、特に限定は無く、パドルミキサー、ニーダーミキサー、ナウターミキサー等の装置の使用が可能である。

#### 【 0 0 1 2 】

混練品は、所定の形状に成形する。活性炭成形体の形状は、ハニカム形状以外にもペレット状、球状が可能である。それらの成形方法は特に限定は無く、各々の形状に応じた既知の成形方法で実施可能である。ハニカム形状に成形する場合には、ハニカムダイスからの押出しにより成形する方法がある。押出されたハニカムの形状、サイズ等は特に限定されず、丸型、正方形、長方形等の従来存在する形状のハニカムが製造可能である。ハニカムのセル数は、 $100\sim 800$ セル/ $\text{in}^2$ であり、好ましくは、 $200\sim 600$ セル/ $\text{in}^2$ であり、ハニカムのリブ厚は、通常 $0.08\sim 3.0$ mm、好ましくは $0.1\sim 2.5$ mmである。ハニカムの周囲部のリブの厚みを厚くしたり、またハニカム内部に十字型にリブを交わらせたり、その他の工夫を加えてハニカム構造体そのものの強度を改良させた形状であってもよい。ペレット状の場合には、ペレタイザー等の押し出し成形法、球状の場合には転動造粒法等がその代表例として挙げられる。

活性炭成形体は乾燥させた後に、不活性雰囲気下で炭化を実施する。乾燥は、成形物に含まれる水分および低沸点物を蒸発させるために必要である。乾燥温度は通常 $70\sim 150^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $90\sim 130^{\circ}\text{C}$ である。乾燥時間は、通常1～8時間、好ましくは、2～4時間である。乾燥装置には、特に限定は無く、各々の形状に応じた既知の乾燥方法で実施可能である。代表例としては、ハニカム形状の場合には

、電気乾燥器での静止乾燥やコンベアー炉での連続乾燥が、ペレット状や球状の場合には、ロータリードライヤーによる乾燥が挙げられる。

### 【 0 0 1 3 】

乾燥後の成形物は、フェノール・アルデヒド系樹脂を溶融、硬化させるために不活性雰囲気下、通常150～250℃、好ましくは170～220℃に加熱する。硬化時間は、通常0.5～5時間であり、フェノール・アルデヒド系樹脂の含有量によって適宜調整することができる。

硬化後、不活性雰囲気下で炭化をおこなう。炭化温度は、通常500～1500℃、好ましくは700～1200℃である。炭化時間は、通常0.5～10時間、好ましくは1～8時間であり、フェノール・アルデヒド系樹脂の含有量によって調整することができる。硬化から炭化にいたる工程は、同じ装置を用いて一連の操作として実施してもかまわない。不活性雰囲気下を作り出す方法としては、たとえば窒素ガスやアルゴンガスなどの不活性気体またはその混合ガスもしくはそれらを主成分とするガスを流通させる方法、燃焼ガスを流通させる方法、コークス等の炭素材料に埋没させることにより空気を遮断させる方法等があり、活性炭成形体の形状・サイズ等により選択可能である。硬化および炭化に使用する装置には特に限定は無く、各々の形状に応じた既知の方法で実施可能である。代表例として示せば、ハニカム形状の場合には、電気炉を用いた静止状態での炭化やコンベアー炉での連続炭化等が、ペレット状や球状の場合には、ロータリーキルンや流動炉などが挙げられる。

### 【 0 0 1 4 】

#### 【実施例】

以下に実施例、比較例および試験例をあげて、本発明を具体的に説明する。

#### 実施例 1

活性炭として、ヤシ殻炭化品を水蒸気賦活して製造した粉末活性炭を使用した。この活性炭は、表面積は1600m<sup>2</sup>/gであり、150μm以下の粒子が99重量%のものであった。

フェノール・アルデヒド系樹脂としてベルパール S 890（鐘紡株式会社製）を用いた。このフェノール・アルデヒド系樹脂は、フェノール類とホルムアルデヒ

ドの共重合により製造されており、常温（25℃）で粉末状の固体で、粒子形状は球状であり、75  $\mu$ m以下の粒子が98.5重量%、比重1.24、嵩密度0.4g/ccのものであった。

溶媒としてはメタノールを使用した。フェノール・アルデヒド系樹脂のメタノールに対する可溶成分は94重量%であった。また成形助剤としてメチルセルロースを用いた

活性炭、フェノール・アルデヒド系樹脂、メタノール、メチルセルロース、水を下記の割合で加えて混合した。なお、実施例、比較例に示す使用割合は、活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂の合計重量に対する重量%で表した。

活性炭	60重量%
フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
メタノール	30重量%
水	85重量%
メチルセルロース	15重量%

これらの混合物を所定のダイスを付けた押出し成形機を用いて、セル数300セル/in<sup>2</sup>、リブ厚み0.15mm、30mmX30mm角、長さ30mmのハニカム状に成形した。この成形品を電気乾燥器に入れ、115℃で2時間乾燥させた後、匣鉢に成形品を入れ周囲にコークスを充填し空気を遮断した。匣鉢を電気炉に入れ5℃/分の条件で200℃まで昇温して1時間保持し、次いで5℃/分の昇温速度で900℃まで昇温して1時間保持させることにより炭化をおこなった。冷却後、匣鉢よりハニカム状活性炭を取り出した。

#### 【 0 0 1 5 】

#### 実施例2

活性炭とフェノール・アルデヒド系樹脂は、実施例1と同じものを使用し、溶媒として酢酸エチルを使用した。このフェノール・アルデヒド系樹脂の酢酸エチルに対する可溶成分は25重量%であった。

フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、メチルセルロース、酢酸エチル、水を下記の割合で加え混合した。

活性炭	60重量%
-----	-------



フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
酢酸エチル	30重量%
水	85重量%
メチルセルロース	15重量%

この混合物を用いて、実施例 1 と同じ方法でハニカム状活性炭を作った。

【 0 0 1 6 】

比較例 1

フェノール・アルデヒド系樹脂として水分散型フェノール・アルデヒド系樹脂エマルジョン溶液（固形分45重量%）を用いた。フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、メチルセルロース、下記の割合で加え混合した。

活性炭	60重量%
フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
メチルセルロース	15重量%

この混合物を用いて、実施例 1 と同じ方法でハニカム状活性炭を作った。

【 0 0 1 7 】

比較例 2

活性炭及びフェノール・アルデヒド系樹脂は、実施例 1 と同じものを使用した。溶媒としてメチルセロソルブを使用した。使用した樹脂のメチルセロソルブに対する可溶成分は99.5重量%であった。

フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、メチルセロソルブ、メチルセルロースを下記の割合で加え混合した。

活性炭	60重量%
フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
メチルセロソルブ	30重量%
水	85重量%
メチルセルロース	15重量%

この混合物を用いて実施例 1 と同じ方法でハニカム状活性炭を作った。

比較例 3

フェノール・アルデヒド系樹脂としてメタノール可溶成分2重量%以下とい

う溶解性の低いものを使用した。この樹脂は、常温（25℃）で固体状の粉末粒子で、形状は球状、75  $\mu\text{m}$ 以下の粒子が98重量%、比重1.35、嵩密度0.4g/ccのものであった。溶媒としてメタノールを使用した。

フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、メチルセルロース、メタノール、下記の割合で加え混合した。

活性炭	60重量%
フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
メタノール	30重量%
水	85重量%
メチルセルロース	15重量%

この混合物を用いて、実施例1と同じ方法でハニカム状活性炭を作った。

【0018】

#### 比較例4

活性炭、フェノール・アルデヒド系樹脂は実施例1と同じものを用いた。溶媒を使用せずに、フェノール・アルデヒド系樹脂、活性炭、メチルセルロース、水を下記の割合で加え混合した。

活性炭	60重量%
フェノール・アルデヒド系樹脂	40重量%
水	85重量%
メチルセルロース	15重量%

この混合物を用いて、実施例1と同じ方法でハニカム状活性炭を作った。しかし炭化後の成形体は強度を保持しておらず、成形体の形状が崩れていた。

【0019】

#### 比較例5

実施例1と同じ処方の混合物を混練、成形、乾燥させただけで、炭化を行なわなかったものを作成した。

【0020】

#### 試験例1

実施例1および2、比較例1～5で得られたハニカム状活性炭の吸着性能を示



す指標として比表面積の測定を行った。測定は、ハニカム成形品を破碎したものを試料とし、マイクロメリテックス社製の A S A P 2400 を用いて測定をおこなった。250℃で2時間の真空脱気を行なうことにより前処理をおこない、-196℃における窒素の平衡吸着量を相対圧0.01～0.1の範囲で5点測定した。比表面積の計算は、BET式により計算した。

ハニカムの強度を表す指標として圧縮強度を測定した。ハニカム成形品を10mm X 10mm X 10mmのサンプルピースに加工したものを試料とし、島津製作所製のオートグラフを用いてセル面に対して1mm/分の速度で加圧を行ない、最大荷重点をハニカムの圧縮強度とした。

【 0 0 2 1 】

【表1】

		実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
フェノール樹脂	形状 (25℃)	粉末固体	粉末固体	エマルジョン	粉末固体	粉末固体	粉末固体	粉末固体
	溶媒可溶成分 (重量%)	94	85	---	99.5	2	95	94
溶媒の種類		メタノール	イソプロピルアルコール	---	メチルセロソルブ	メタノール	---	メタノール
組成 (重量%)	活性炭	60	60	60	60	60	60	60
	フェノール・アルデヒド系樹脂	40	40	40	40	40	40	40
	メチルセルロース	15	15	15	15	15	15	15
	溶媒	30	30	---	30	30	---	30
	水	85	85	---	85	85	85	85
工程	乾燥工程 (115℃)	○	○	○	○	○	○	○
	炭化工程 (900℃)	○	○	○	○	○	○	---
比表面積 (m <sup>2</sup> /g)		1033	980	439	850	558	1100	414
圧縮強度 (KPa)		4.5	3.6	10.5	4.9	<0.1	<0.1	20.5

【表1】から明らかなように、実施例1および実施例2においては、強度および吸着量ともに高いものが得られた。フェノール・アルデヒド系樹脂エマルジョンを用いた比較例1、樹脂のほぼ全量を溶解させるメチルセロソルブを溶媒として用いた比較例2、メタノールに溶解性の低いフェノール・アルデヒド系樹脂を用いた比較例3および炭化を実施しなかった比較例5で得られたものは、比表面積が小さく、吸着剤として使用した場合には、吸着能力が高くないため、その使用が制限される。また溶媒を用いなかった比較例4では、吸着量は実施例1および実施例2で得られたそれと同等であるが、強度が著しく低いため成形体としての使用はできないものであった。

以上の結果より、活性炭、フェノール・アルデヒド系樹脂、本発明の特定の溶媒を含んでなる混練物を成形し、その成形物を、乾燥、硬化させた後に不活性雰囲気下で炭化する本発明の方法で製造された活性炭成形体は、高吸着性能および高強度を有していることが確認された。

## 【 0 0 2 2 】

## 試験例 2

同型に成形された実施例 1 の活性炭ハニカムおよび市販されているハニカム状活性炭を用いて、試験例 1 と同様の方法により酸接触後の圧縮強度の低下を比較した。市販されているハニカム状活性炭は、粒状活性炭と粘土を主原料として製造されたものである。

各々のハニカム状活性炭を 20% 硫酸水溶液中に全て浸漬させ 1 時間煮沸させた後、115℃で乾燥した。次いで、同様の操作を再度繰返し、処理前後の圧縮強度を比較した。

## 【 0 0 2 3 】

## 【表 2】

	(単位：KPa)		
	処理前	1回処理後	2回処理後
実施例 1	3.8	3.6	3.5
市販活性炭ハニカム	2.0	1.6	1.5

実施例 1 で得られた活性炭ハニカムは、市販の活性炭ハニカムの 1.9 倍の強度を有しており、酸接触後の強度低下も市販活性炭ハニカムに比べて低く抑えられていた。

## 【 0 0 2 4 】

## 【発明の効果】

本発明の方法により製造される活性炭成形体は、従来のものに比して高い吸着性能と高い機械的強度を有し、しかも、酸や水に接触しても、高い強度を維持している。したがって、市販されている活性炭成形体と同様、下水処理場から発生する臭気の除去、溶媒回収、オゾン処理等の広い分野での利用が期待される。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高い吸着性能と高い強度、たとえば圧縮強度、酸や水に接触後の強度、を有する活性炭形成体、特にハニカムの製造方法の提供。

【解決手段】 活性炭、溶媒および常温で固体でありかつ使用溶媒に対する可溶成分が50～95重量%であるフェノール・アルデヒド系樹脂を含んでなる混練物を成形、乾燥した後、不活性雰囲気下で炭化して製造した活性炭成形体が前記課題を解決した。

【選択図】 なし

認 定 ・ 付 加 情 報

特許出願の番号	特願 2 0 0 1 - 0 2 3 3 3 5
受付番号	5 0 1 0 0 1 3 4 2 1 0
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 3 年 2 月 1 日

< 認定情報 ・ 付加情報 >  
【提出日】

平成13年 1月31日

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 2 9 3 4 ]

1. 変更年月日 1 9 9 2 年 1 月 2 2 日

[変更理由] 住所変更

住 所 大阪府大阪市中央区道修町四丁目 1 番 1 号

氏 名 武田薬品工業株式会社